

*ATTEMPTS TO ALTER THE BIOLOGICAL PROPERTIES  
OF CIGARETTE SMOKE*

C.D. STILL<sup>S</sup> and R.L. STEDMAN\*

*ESSAIS DE MODIFICATION DES PROPRIÉTÉS BIOLOGIQUES  
DE LA FUMÉE DE CIGARETTES*

*The recent appearance of two important publications (1, 2) which evaluate available data on smoking-health relationships has resulted in increased effort and interest in many aspects of tobacco chemistry. Undoubtedly, technological studies on ways to reduce or eliminate possible adverse effects of smoking will be accelerated. Some of these studies may be undertaken by workers who are new in the field of tobacco chemistry or who have pursued other lines of endeavor in tobacco research. The purpose of the present publication is to summarize the available information in this field. In general, this report supplements the publication of Waltz and Häusermann, who reviewed selected earlier developments (3).*

La parution récente de deux importantes publications (1-2) qui procèdent à une estimation des données actuelles sur les relations entre le tabac et la santé a eu pour résultat d'accroître l'intérêt actif apporté à de nombreux aspects de la chimie du tabac. Sans nul doute, les études technologiques sur les moyens d'éliminer les effets défavorables possibles de l'usage du tabac en seront accélérées. Certaines de ces études ont été entreprises par des chercheurs qui sont nouveaux-venus dans le domaine de la chimie du tabac ou qui avaient jusqu'alors poursuivi d'autres buts dans la recherche tabacologique. La présente publication se propose de résumer l'information disponible dans ce domaine. En général, ce rapport est complémentaire de la publication de Waltz et Häusermann qui présentait une sélection des plus récents développements de la question (3).

*Cigarette smoke is an aerosol consisting of a discontinuous particulate phase suspended in a continuous gaseous phase. The gaseous phase may contain both true gases and vapors. The particulate phase (particulate matter) consists of  $3-20 \times 10^6$  particles per millimeter of smoke (4, 5) with more than 99 percent of the particles having diameters in the range of 0.1 - 1.5 microns (4). The particulate phase comprises about 5-10 percent of the total smoke (6, 7, 49).*

*Approximately 685 compounds have been identified in tobacco leaf and smoke (8) and many of these compounds are known to possess physiological properties when tested as pure substances. In a general way, these physiological properties can be*

La fumée de cigarette est un aérosol composé d'une phase particulaire discontinue, suspendue dans une phase gazeuse continue. La phase peut contenir à la fois des gaz permanents et des vapeurs. La phase particulaire (matière particulaire) se compose de 3 à  $20.10^6$  particules par mm<sup>3</sup> de fumée (4.5) avec plus de 99% de particules ayant des diamètres de 0,1 à 1,5 μ (4). La phase particulaire représente de 5 à 10 % de la fumée totale (6.7.49).

Environ 685 composés chimiques ont été identifiés dans le tabac et dans la fumée (8), et un bon nombre de ces composés possèdent notoirement des propriétés physiologiques, lorsqu'ils sont testés à l'état de substances pures. En termes généraux, ces

---

\* Eastern Utilization Research and Development Division, Agricultural Research Service, U.S. Department of Agriculture 600, East Mermaid Lane, Philadelphia, Pennsylvania, 19118, U.S.A.

*classified as carcinogenic, cocarcinogenic, and/or irritative, the latter including for the purpose of this discussion, agents which exhibit ciliostatic activity.*

*With two exceptions\*, the compounds in smoke having known carcinogenic activity are polynuclear aromatic hydrocarbons and heterocyclic compounds of which about 81 have been isolated and identified (9, 11) with various degrees of assurance. Of the 81, about 15-20 have been claimed to possess significant carcinogenic properties (10, 11). Smoke also contains polynuclear aromatic hydrocarbons which are capable of antagonizing the action of carcinogenic polynuclears under certain conditions (1, 12). The components in smoke known to have cocarcinogenic activity are phenol and related compounds; many other cocarcinogenic agents may exist which have not been identified\*\*. Compounds in smoke known to have irritative properties include such substances as acrolein, nitrogen dioxide, and acetaldehyde which may have nonspecific irritating characteristics (1, 48) as well as ciliostatic or other effects, e.g. possible interference with normal patterns of mucus flow in the respiratory tract.*

*Three major approaches have been used in the published work on developing an altered cigarette. The first approach concerns the use of cigarette or paper additives designed to change the cigarette burn temperature or to act by other mechanisms in producing a smoke with altered composition. The second approach consists of developing improved filters which remove substances of known biological activity from smoke after they are already formed. The third approach concerns the solvent extraction of tobacco to remove substances of possible biological importance or precursors thereof before the cigarette is manufactured. In addition, attempts have been made to produce minor changes in smoke properties by other means, e.g. changes in paper porosity.*

propriétés physiologiques peuvent être classées sous les rubriques suivantes : cancérogènes, co-cancérogènes et/ou irritatives, cette dernière catégorie comprenant, pour les fins propres de cet exposé, l'activité ciliostatique.

Sauf deux exceptions\*, les composés cancérogènes présents dans la fumée sont des hydrocarbures aromatiques polynucléaires et des composés hétérocycliques, parmi lesquels environ 81 ont été isolés et identifiés (9,11), à des niveaux variables de certitude. Sur ces 81, environ 15-20 ont été présentés comme possédant des propriétés cancérogènes significatives (10,11). La fumée contient également des hydrocarbures aromatiques polynucléaires susceptibles d'agir dans certaines conditions comme antagonistes des polynucléaires cancérogènes (1,12). Les composants de la fumée connus pour posséder une activité co-cancérogène sont le phénol et les composés apparentés; beaucoup d'autres agents co-cancérogènes sont susceptibles d'être présents, mais n'ont pas été identifiés\*\*. Les composés présents dans la fumée connus pour posséder des propriétés irritantes comprennent des substances telles que l'acroléine, le dioxyde d'azote et l'acétaldehyde, qui sont susceptibles de présenter des caractères irritants non spécifiques (1,48), et qui peuvent exercer aussi bien des effets ciliostatiques ou autres, tels que par exemple une interférence éventuelle avec les processus normaux d'écoulement du flot muqueux dans le tractus respiratoire.

Trois approches majeures ont été suivies dans les travaux publiés sur les tentatives de mise au point d'une cigarette « modifiée ». La première se rapporte à l'utilisation d'additifs à la cigarette totale, ou au papier, conçus pour modifier la température de combustion de la cigarette ou pour provoquer par d'autres mécanismes la production d'une fumée de composition modifiée. La seconde consiste à mettre au point des filtres améliorés qui éliminent de la fumée des substances d'activité biologique connue, après leur formation. La troisième concerne l'extraction du tabac par solvants pour en retirer les substances douées d'une action biologique éventuelle, ou leurs précurseurs, et ceci avant la fabrication des cigarettes. En outre, des tentatives ont été faites pour produire des variations mineures dans les propriétés de la fumée par d'autres moyens, et par exemple en faisant varier la porosité du papier.

\* Lindsey (10) cite  $\beta$ -naphthol et arsenious oxide as carcinogens occurring in smoke. Although the  $\alpha$ -emitter polonium-210, is found in cigarette smoke, some controversy on its biological significance exists (13, 14, 15).

\*\* Neukomm et al. (16) cite certain unidentified polymeric substances of smoke as having cocarcinogenic activity.

\* Lindsey (10) cite au nombre des cancérogènes présents dans la fumée le  $\beta$ -naphtol et l'oxyde arsénieux. Bien que le Polonium 210, source de rayonnement  $\alpha$ , soit présent dans la fumée, l'accord n'est pas totalement établi quant à sa signification biologique (13, 14, 15).

\*\* Neukomm et coll. (16) ont cité parmi les composants de la fumée présentant une activité co-cancérogène certains polymères non identifiés.

**BURN TEMPERATURE ALTERATION.** *The burning of most, if not all, organic compounds and substances results in the formation of polynuclear hydrocarbons when the conditions are similar to those existing in a burning cigarette. Thus, such greatly different structures as oxalic acid, cellulose, paraffinic hydrocarbons and sterols have been shown to produce benzo[a]pyrene on pyrolysis (11, 17, 23). The general mechanism of formation of benzo[a]pyrene and related hydrocarbons from organic compounds during pyrolysis is free radical in nature; Hurd and co-workers (18) and Badger (19) have discussed details of the possible avenues of hydrocarbon synthesis via free radical mechanisms, including polynuclear aromatic compounds. In the case of cigarette smoke, terpenes have been postulated to be primary precursors of the polynuclear compounds (20).*

*A relationship exists between pyrolytic temperature and the number of free radicals generated during the heating of organic substances (21). The available data on this point have shown that there is an optimum temperature for free radical generation. As expected, a similar temperature-concentration relationship is found for polynuclear synthesis during pyrolysis. Wynder et al. (22) has shown that the benzo[a]pyrene levels obtained by the pyrolysis of tobacco sterols increase ten fold on increasing the pyrolysis temperature from 720°C to 850°C. Lam (23) has presented similar data on paraffinic hydrocarbons found in tobacco. By painting the backs of mice, Wynder and co-workers (24, 25) have shown that the tumorigenic activity of pyrolysates of hexane extracts of tobacco is decreased by lowering the pyrolysis temperature incrementally until no activity is obtained at 560°C after 13 months of exposure. Pyrolysates prepared by heating the extracts at 800°C, 720°C or 640°C in an inert atmosphere showed progressively longer latent periods for the development of papillomas and carcinomas compared to the pyrolysate obtained at 880°C. As a result of these observations, many workers have suggested the possibility of adding temperature depressants to cigarettes to reduce the coal temperature below 875°C with the hope of lowering the benzo[a]pyrene (and/or other polynuclear) content and the tumorigenic activity of smoke for animals. Of course, some argument against this rationale may be offered based on at least two observations. First, the benzo[a]pyrene content of smoke can only account for about 2.5 percent of the observed carcinogenic activity (1); and second, Roe (26) has presented strong experimental evidence that benzo[a]pyrene plays a minor if not insignificant role in the tumorigenic*

#### **MODIFICATION DE LA TEMPERATURE DE COMBUSTION.**

*La combustion de la plupart, sinon de tous les composés et substances organiques entraîne la formation d'hydrocarbures poly-nucléaires lorsque les conditions de milieu sont voisines de celles qui existent dans une cigarette en combustion. C'est ainsi qu'on a montré que des structures aussi largement différentes que l'acide oxalique, la cellulose, les hydrocarbures paraffiniques et les stérols produisent le benzo-a-pyrène à la pyrolyse (11,17,23). Le mécanisme général de la formation du benzo-a-pyrène et des hydrocarbures apparentés à partir de composés organiques, pendant la pyrolyse, est de nature radicalique : Hurd et coll. (18) et Badger (19) ont discuté du détail des voies possibles de la synthèse hydrocarbonée par les mécanismes radicaliques, y compris des composés aromatiques polynucléaires. Dans le cas de la fumée de cigarette, il a été postulé que les terpènes pourraient être les précurseurs primaires des composés polynucléaires (20).*

*Il existe une relation entre la température de pyrolyse et le nombre de radicaux libres engendrés au cours du chauffage des substances organiques (21). Les informations disponibles sur ce point ont mis en évidence qu'il existe un optimum de température pour la production de radicaux libres. Comme prévu, on trouve une relation du même ordre entre température et concentration pour la synthèse des polynucléaires au cours de la pyrolyse. Wynder et al. (22) ont montré que les niveaux de benzo-a-pyrène obtenus par pyrolyse des stérols du tabac sont décuplés lorsqu'on augmente la température de pyrolyse de 720 à 850°C. Lam (23) a présenté des faits similaires à propos des hydrocarbures paraffiniques du tabac. Par badigeonnage du dos de la souris, Wynder et coll. (24, 25) ont montré que l'activité tumorigène de pyrolysats d'extraits hénaniques de tabac est graduellement diminuée lorsqu'on abaisse la température de pyrolyse, jusqu'à obtenir la disparition de l'activité après 13 mois de badigeonnage pour une température de 560°C. Les pyrolysats préparés par chauffage des extraits en atmosphère inerte à 800, 720 ou 640°C ont montré des temps de latence progressivement croissants, pour le développement des papillomes et des carcinomes, comparés aux pyrolysats obtenus à 880°C. Du fait de ces observations, de nombreux chercheurs ont suggéré la possibilité d'ajouter à la cigarette des additifs susceptibles d'abaisser la température du cône d'ignition au-dessous de 875°C dans l'espoir de diminuer la teneur en benzo-a-pyrène (et/ou autres polynucléaires) de la fumée et son activité tumorigène sur l'animal. Certains arguments peuvent naturellement être opposés à cette hypothèse de travail, se basant sur au moins deux faits d'observation : en premier lieu, la teneur en benzo-a-pyrène de la fumée n'est susceptible de rendre compte que de*

effect. However, many other changes in composition can be visualized by a reduction in coal temperature, some of which may fortuitously or otherwise alter the tumorigenic properties of smoke.

Table 1 lists the substances appearing in the domestic patent literature which have been specifically claimed to reduce the coal temperature of a cigarette. Unfortunately, no data are available on the alterations, if any, in tumorigenic activity for animals or in chemical composition. In fact, confirmation of the claimed reductions in coal temperature have not appeared although the effect of alumina trihydrate (U.S. = 3,034,932) has been substantiated in this laboratory.

OTHER CHEMICAL ADDITIVES. Some work has been done on the use of chemical additives in cigarettes designed to alter the biological properties of smoke by mechanisms other than temperature depression. Included in these additives are compounds intended to act as oxidizing agents, free radical scavengers, or « catalysts ». Many other compounds have been tested empirically without regard to mechanism.

Alvord and Cardon (27) have approached the problem by emphasizing the treatment of the cigarette paper since the paper was shown to contribute disproportionately to the benzo[a]pyrene content of smoke based on relative weights of paper and tobacco in a cigarette. (However, the tobacco rather than the paper was still claimed to be the major source of the total benzo[a]pyrene in the smoke). Various halides, nitrates, phosphates, acetates, perchlorates and ammonium salts were tested as paper additives. Ammonium sulfamate was found to be effective in reducing the benzo[a]pyrene content of tar from pyrolyzed treated paper by more than 90 percent and of smoke from cigarettes made with treated paper by about 50 percent. The use of ammonium sulfamate was subsequently patented (28). Latarjet et al. (29) confirmed the results of Alvord and Cardon in respect to the effect of ammonium sulfamate on burning treated paper (without tobacco therein) and showed that treatment of cigarette paper with palladium reduced the benzo[a]pyrene content of tar produced by burning such paper. In a later publication Cuzin et al.

2,5 pour cent environ de l'activité cancérogène observée (1); en second lieu, Roe (26) a présenté une preuve expérimentale très importante du rôle mineur, sinon nul, joué par le benzo-a-pyrène dans le processus tumorigène. Cependant, on peut envisager qu'une réduction de la température du cône d'ignition provoque de nombreuses autres modifications de la composition, dont certaines peuvent fortuitement, ou de toute autre manière, modifier les propriétés tumorigènes de la fumée.

Le tableau 1 énumère les substances relevées dans la littérature des Brevets US qui font l'objet d'une revendication spécifique touchant la réduction de la température du cône d'ignition d'une cigarette. Malheureusement, aucune donnée n'est fournie sur les variations, éventuellement observables, de l'activité tumorigène sur animal ou de la composition chimique. En fait, aucune confirmation n'a été publiée des revendications portant sur la réduction des températures du cône d'ignition, bien que l'effet du trihydrate d'alumine (U.S. = 3, 034, 932) ait été prouvé dans nos laboratoires.

AUTRES ADDITIFS CHIMIQUES. Quelques recherches ont été effectuées sur l'utilisation dans la cigarette d'additifs chimiques conçus pour modifier les propriétés biologiques de la fumée, par des mécanismes autres que l'abaissement de température. Sont compris dans ces additifs les composés conçus pour agir en tant qu'oxydants, séquestrants de radicaux libres, ou « catalyseurs ». Beaucoup d'autres composés ont été essayés empiriquement sans considération de leur mécanisme d'action.

Alvord et Cardon (27) dans leur approche du problème mettent l'accent sur le traitement du papier à cigarette partant de l'idée que ce dernier contribue à la teneur en benzo-a-pyrène de la fumée d'une façon plus que proportionnelle au poids relatif du papier et du tabac dans la cigarette (cependant le tabac plutôt que le papier reste toujours considéré comme la source prépondérante du benzo-a-pyrène total de la fumée). Différents halogénures, nitrates, phosphates, acétates, perchlorates et des sels d'ammonium ont été testés en tant qu'additifs au papier. On a trouvé que le sulfamate d'ammonium entraînait effectivement une réduction de plus de 90 % de la teneur en benzo-a-pyrène dans les goudrons de papier traité pyrolysé, et d'environ 50 % dans la fumée de cigarettes confectionnées avec du papier traité. L'utilisation du sulfamate d'ammonium a été en conséquence brevetée (28). Latarjet et al. (29) ont confirmé les résultats d'Alvord et Cardon pour ce qui concerne l'effet du sulfamate d'ammonium sur les produits de pyrolyse du papier traité seul et ont montré que le traitement du papier à cigarette par le palladium réduisait la teneur en benzo-a-

(50) failed to find a significant reduction of benzo[a]pyrene in the smoke from cigarettes containing paper treated with ammonium sulfamate and indicated that the cigarette paper probably contributes insignificantly to the level of benzo[a]pyrene in smoke. Bentley and Burgan (30) were also unable to confirm the reduction of benzo[a]pyrene in cigarette smoke by the use of ammonium sulfamate treated paper although they reported a 60 percent decrease in the benzo[a]pyrene content of cigarettes which contained tobacco treated with ammonium sulfamate.

In addition to this ammonium salt, Bentley and Burgan tested a large number of cigarette additives for their effect on the benzo[a]pyrene content of cigarette smoke. Included in these were heavy metal salts, chain reaction inhibitors, oxidizing agents and compounds yielding large amounts of water on decomposition. The following group of compounds did not reduce the polynuclear level : various salts of ammonia and heavy metals; potassium halides; aniline; urea; phenol; and ascorbic acid. Potassium nitrate, sodium nitrite, copper nitrate, glycerol and ethylene glycol effected reductions of 56-79 percent in the benzo[a]pyrene content of smoke. In later work de Souza et al. (31) failed to confirm the effect of glycerol and claimed that the reproducibility of Bentley and Burgan's method was insufficient to reflect the true effect of glycerol.

Wynder (25) has reported on the testing of a large number of inorganic substances as cigarette additives designed to lower the biological activity of smoke. Included in these were various aluminum oxides, copper nitrate, boric acid, aluminum silicate, cobalt oxide and magnesium oxide. However, copper nitrate, when used at a level of 4-5 percent, was the only material which effected a significant reduction of the benzo[a]pyrene content of the smoke. In biological tests, the inclusion of 5 percent calcium carbonate or 5 percent copper nitrate as cigarette additives was shown to reduce the papilloma and carcinoma rates in animals to about one-half to one-sixth. These results tend to confirm the findings of Roe cited above since calcium carbonate was not found to alter the benzo[a]pyrene content of smoke significantly.

Effective reductions in the total particulate matter of smoke can be made by the use of additives to cigarette paper. Schur and Rickards (32) have discussed the use of

pyrène du goudron produit par la combustion d'un tel papier. Dans une publication ultérieure Cuzin et al. (50) n'ont pas été en mesure de trouver une diminution significative du benzo-a-pyrène dans la fumée de cigarettes dont le papier avait été traité au sulfamate, et ont indiqué que le papier à cigarettes contribue probablement de façon insignifiante au niveau du benzo-a-pyrène dans la fumée. Bentley et Burgan (30) n'ont pas été non plus en mesure de confirmer la diminution des teneurs en benzo-a-pyrène dans la fumée de cigarette par l'emploi de papier traité au sulfamate d'ammonium, bien qu'ils rapportent une diminution de 60 % de la teneur en benzo-a-pyrène du goudron de fumée de cigarettes contenant du tabac traité au sulfamate d'ammonium.

En plus de ce sel d'ammonium, Bentley et Burgan ont testé l'effet de nombreux additifs sur la teneur en benzo-a-pyrène de la fumée de cigarette. Parmi eux figuraient des sels de métaux lourds, des inhibiteurs de réaction en chaîne, des agents oxydants et des composés susceptibles de fournir de grandes quantités d'eau à la décomposition. Le groupe suivant de composés n'a entraîné aucune diminution du niveau des polynucléaires : divers sels d'ammonium et de métaux lourds, halogénures de potassium, aniline, urée, phénol, acide ascorbique. Le nitrate de potassium, le nitrite de sodium, le nitrate de cuivre, le glycérol et l'éthylène-glycol ont réalisé des réductions de 56 à 79% de la teneur en benzo-a-pyrène de la fumée. Dans un travail ultérieur Souza et al. (31) n'ont pas pu confirmer l'effet du glycérol et ont avancé que le niveau de reproductibilité des méthodes de Bentley et Burgan était insuffisant pour rendre compte de l'effet vrai du glycérol.

Wynder (25) a publié les résultats des essais d'une grande quantité de substances inorganiques conçues comme susceptibles de diminuer l'activité biologique de la fumée. Parmi elles figurent divers oxydes d'aluminium, le nitrate de cuivre, l'acide borique, le silicate d'aluminium, l'oxyde de cobalt et l'oxyde de magnésium. Cependant, seul le nitrate de cuivre, employé à un taux de 4-5% a entraîné une réduction significative de la teneur en benzo-a-pyrène de la fumée. L'expérimentation biologique a montré que l'addition de 5 % de carbonate de calcium ou de 5 % de nitrate de cuivre réduisait les taux de papillomes et de carcinomes sur animal dans la proportion de 1/2 à 1/6. Ces résultats tendent à confirmer les observations de Roe citées supra, étant donné que le carbonate de calcium n'a pas été trouvé entraîner une variation significative du taux de benzo-a-pyrène de la fumée.

Des réductions effectives de la matière particulaire totale de la fumée peuvent être réalisées par l'utilisation d'additifs au papier. Schur et Rickards (32) ont discuté l'utili-

*phosphates, nitrates and other inorganic and organic salts for this purpose. Essentially, such additives act by increasing the glow rate of the cigarette and have been studied primarily in association with changes in paper porosity (vide infra).*

*Many more tobacco, paper and filter additives designed to alter the chemical composition and, presumably, the biological activity of smoke appear in the domestic patent literature. A list of most, if not all, additives in this category appearing after 1945 is given in Table 2. Unfortunately, the available chemical and biological data provided on these substances are of little consequence in evaluating their real usefulness.*

**FILTRATION.** *The use of filtration to alter smoke properties is well known. The ideal filter is one which removes selected biologically active substances effectively without altering flavor and aroma constituents. This idealized removal is referred to as « selective filtration ». With two exceptions, all currently used filters are believed to be essentially mechanical and non-selective and merely remove a percentage of the total particulate matter by physical entrapment. The commonly used cellulose (paper) and cellulose acetate filters act generally in this manner although there are some data to show some selectivity under certain conditions (33, 51). Certain charcoal filters and cellulose acetate filters impregnated with polyethers and related substances show some selectivity.*

*Haag (34) and his co-workers have studied the effect of filtration on the chemical and irritative properties of cigarette smoke. A charcoal impregnated composite filter was found to be significantly more effective than the filter without charcoal in reducing certain components of the vapor phase of smoke, such as acetaldehyde, methyl ethyl ketone, methyl alcohol, and methyl furan, and in reducing irritation of the rabbit conjunctiva. Using excised rabbit trachea, Kensler and Battista (35) found that the ciliostatic activity of cigarette smoke was primarily due to vapor phase constituents of smoke and especially hydrogen cyanide, formaldehyde, acrolein, ammonia and nitrogen dioxide, although the last of these might have been of questionable biological significance. Commercial cigarettes with cellulose acetate filters or cellulose acetate plus charcoal impregnated paper filters*

sation de phosphates, nitrates et autres sels organiques ou inorganiques à cette fin. Fondamentalement parlant, ce genre d'additifs agit par augmentation de la vitesse de combustion spontanée de la cigarette, et ont été examinés principalement par référence aux variations introduites dans la porosité du papier (cf. ci-après).

De nombreux autres additifs au tabac, au papier et au filtre conçus pour modifier la composition chimique, et éventuellement l'activité biologique de la fumée, apparaissent dans la littérature des brevets U.S. Une liste de la plupart d'entre eux, sinon de leur totalité, publiés après 1945, est donnée au tableau 2. On regrettera que les résultats d'expérimentation chimique et biologique recueillis pour ces substances ne présentent qu'une signification réduite pour l'appréciation critique de leur effectivité.

**FILTRATION.** L'utilisation de la filtration pour modifier les propriétés de la fumée est bien connue. Le filtre idéal est celui qui retire effectivement certaines substances biologiquement actives sans altérer le parfum et les facteurs d'arôme. Cette opération soustractive idéale est connue sous le vocable de « filtration sélective ». À part deux exceptions, tous les filtres d'usage courant sont considérés comme exerçant un effet essentiellement mécanique et non-sélectif, et se bornent à éliminer un certain pourcentage de la matière particulaire par piégeage physique. Les filtres d'usage commun en cellulose (papier) et en acétate de cellulose agissent généralement selon ce mode, bien qu'il existe certaines données mettant en évidence un certain niveau de sélectivité dans certaines circonstances (33, 51). Certains filtres en charbon, et certains filtres en acétate de cellulose imprégnés avec des polyéthers et substances connexes manifestent un certain degré de sélectivité.

Haag et coll. (34) ont étudié les effets de la filtration sur les propriétés chimiques et irritantes de la fumée de cigarette. Un filtre composite imprégné de charbon s'est montré significativement plus efficace que le filtre sans charbon pour l'élimination de certains composants de la phase vapeur (tels que acétaldéhyde, méthyléthylcétone, alcool méthylique, méthyl furane) et la diminution de l'irritation exercée sur la conjonctive du lapin. Travailant sur trachée excisée de lapin, Kensler et Battista (35) ont trouvé que l'activité ciliostatique de la fumée de cigarette était principalement due à des constituants de la phase vapeur de la fumée, et en particulier à l'acide cyanhydrique, au formaldéhyde, à l'acroléine, à l'ammoniaque et au dioxyde d'azote bien que ce dernier puisse présenter une signification biologique discutable. Des cigarettes du commerce comportant des filtres en acétate de cellulose

showed a marked reduction of phenol (about 80 percent) in the smoke. Except for the charcoal impregnated filter which reduced the depressant activity slightly, no difference in cilostatic activity was observed between the filter and non-filtered cigarettes\*. However, a specially prepared multiple filter, having treated charcoal granules in a compartment between two cellulose acetate filters, showed a marked reduction in the ciliary depressant activity of the cigarette smoke but little effect on the solid phase of the smoke. Thus, a selective removal of certain vapor phase constituents was attained. In a later publication, Thayer and Kensler (37) showed that the multiple charcoal-cellulose acetate filter possessed certain physiological advantages. Using the degree of inhibition of growth and protein synthesis of human tumor cells in tissue cultures as an index, the multiple filter showed a reduction of about 50-60 percent in inhibitory activity compared to cigarettes with or without plain cellulose acetate filters. Williamson and Allman (38) also presented pertinent data on filters containing charcoal. The course of removal of acetone, acetaldehyde, and isoprene from smoke by experimental charcoal filters on a puff-to-puff basis and the demonstration of a desorptive effect from filters during the last few puffs were made.

Conventional cellulose acetate filters exhibit some degree of specificity for the phenols in smoke (39, 40). Hoffmann and Wynder (39) have studied this effect with respect to such variables as denier of fiber, degree of acetylation of cellulose, degree of «smoothness» of fiber surface and the effect of added plasticizers. Reduction of phenols in smoke up to 90 percent was claimed with selected filter fibers and added plasticizers such as glyceryl triacetate and a polymer of glyceryl propylene oxide. In a later publication, however, Waltz and Häusermann (41) presented data to show that the precision of Hoffmann and Wynder's method necessitated a revision of some of the latter authors' findings, although the demonstration of selectivity of phenol filtration was acceptable. Further information on selective filtration of phenols was presented by Spears (40) who reported little difference in the

\* Dalhamn and Rylander (36) have presented data showing that filter cigarettes are significantly more effective than nonfilters in removing substances which inhibit ciliary activity in cats. The discrepancy may be a question of the experimental techniques employed.

ou en acétate de cellulose plus papier imprégné de charbon ont montré une diminution marquée de la teneur en phénol (environ 80 %) dans la fumée. Exception faite du filtre imprégné de charbon, qui ramenait à un niveau légèrement inférieur l'activité dépressive aucune différence en termes d'activité cilostatique n'a été observée entre cigarettes à filtre et sans filtre\*. Cependant, un filtre multiple de structure spéciale comportant des granules de charbon traité contenues dans un compartiment disposé entre deux filtres en acétate de cellulose, a manifesté une réduction marquée dans l'activité ciliodépressive de la fumée de cigarette, tout en n'exerçant qu'un effet très limité sur la phase solide de la fumée. On a donc réalisé l'élimination sélective de certains constituants de la phase vapeur. Dans une publication ultérieure, Thayer et Kensler (37) ont montré que le filtre multiple charbon-acétate de cellulose présentait certains avantages physiologiques : utilisant comme test le degré d'inhibition de croissance et de synthèse protéique de cultures de tissu tumoral humain, le filtre multiple a témoigné d'une réduction de 50 à 60 % de l'activité inhibitrice, par rapport à des cigarettes sans filtre ou avec des filtres normaux en acétate de cellulose. Williamson et Adam (38) ont également présenté des données pertinentes sur les filtres contenant du charbon, décrivant la progression de l'élimination, par bouffée, de l'acétone, de l'acetaldehyde et de l'isoprène par des filtres expérimentaux au charbon, et mettant en évidence l'effet de désorption réalisé aux dépens du filtre au cours des toutes dernières bouffées.

Les filtres classiques en acétate de cellulose manifestent un certain degré de spécificité vis-à-vis des phénols dans la fumée (39, 40). Hoffmann et Wynder (39) ont étudié ces effets en fonction de variables telles que denier de la fibre, degré d'acétylation de la cellulose, état de surface de la fibre et addition de plastifiants. Une diminution du taux de phénols dans la fumée pouvant atteindre 90 % a été revendiquée par mise en œuvre de fibres filtrantes sélectionnées et addition de plastifiants tels que le triacetyl-glycérine et un polymère de glycéryl-oxyde de propylène. Dans une publication ultérieure cependant Waltz et Häusermann ont présenté des faits tendant à montrer que le niveau de précision des méthodes de Hoffmann et Wynder exigeait une révision des observations de ces auteurs, bien que la mise en évidence d'une filtration sélective des phénols restât acceptable. Une information com-

\* Dalhamn et Rylander (36) ont présenté des faits expérimentaux montrant que les cigarettes à filtres sont significativement plus efficaces que les cigarettes sans filtres pour l'élimination des substances qui inhibent l'activité ciliaire chez le chat. Il est possible que cette contradiction provienne des techniques expérimentales utilisées.

degree of selective filtration of phenols by cellulose diacetate and cellulose triacetate filters. Enhanced selectivity was observed by the incorporation of various polyethers into filters. Essentially all phenol in the vapor phase and about 22 percent of the phenol in the particulate matter were removed by filters containing polyethers.

Although paper and acetylated cellulose are the most commonly used filter materials, other substances have been employed at least experimentally for patent purposes. A list of such materials is given in Table 3. A few substances, including some not discussed above, have been used as special filter additives or materials and these are included in Table 2.

**EXTRACTION OF TOBACCO.** Another concept used in attempts to alter the composition of smoke concerns the treatment of the tobacco by extraction with organic solvents.

Campbell and Lindsey (42) have reported a reduction of polycyclic hydrocarbons, such as benzo[a]pyrene and anthracene, in the smoke as a result of prior exhaustive extraction of the tobacco with cyclohexane. Wynder et al. (22) have shown that smoke from cigarettes extracted with hot hexane yields significantly less smoke condensate than does unextracted cigarette tobacco. However, they found that the extraction procedure had no significant effect in reducing the benzo[a]pyrene content of the smoke and it was concluded that the selective removal of substances from raw tobacco by solvents does not appear to be a practical way of significantly reducing higher polycyclic hydrocarbons in the smoke of such tobacco.

Neukomm and Bonnet (43) developed a process for extracting tobacco to modify its combustion and diminish the amount of polynuclear aromatic hydrocarbons formed during burning. This procedure consists of treatment of the cigarette tobacco with halogenated hydrocarbons followed by impregnation with 0.1 percent by weight of a  $CCl_4$  solution of aluminum diethyl malonate or similar organometallic compounds. A 40-60 percent reduction of polycyclic hydrocarbons in tobacco smoke was claimed as a result of such treatment. Cuzin et al. (44) and Waltz and Häusermann (45) have repeated this work and failed to confirm the claims. No significant difference in biological activity or benzo[a]pyrene content of smoke was obtained with cigarettes containing extracted tobacco using either a short term biological

plémentaire concernant la filtration sélective des phénols a été présentée par Spears (40) qui rapporte n'avoir observé que peu de différence dans le degré de sélectivité de filtration des phénols par les filtres en diacétate contre triacétate de cellulose. On a observé une exaltation de la sélectivité par incorporation de divers polyéthers dans les filtres. Pratiquement tout le phénol de la phase vapeur et environ 22% du phénol de la phase particulaire sont éliminés par les filtres contenant des polyéthers.

Bien que le papier et la cellulose acétylée représentent le matériau le plus communément utilisé dans les filtres, d'autres substances ont été employées au moins expérimentalement aux fins de brevets. Nous donnons au tableau 3 une énumération de ces matériaux. Quelques substances, dont certaines non discutées ci-dessus, ont été utilisées comme additifs ou matériaux spéciaux pour filtres et sont citées au tableau 2.

**EXTRACTION DU TABAC.** Un autre concept utilisé dans les tentatives de modification de la composition de la fumée se réfère au traitement du tabac par extraction avec des solvants organiques.

Campbell et Lindsey (42) ont rapporté l'existence d'une réduction des hydrocarbures polycycliques, tels que le benzo-a-pyrène et l'anthracène, dans la fumée comme résultant d'une extraction préalable exhaustive du tabac par le cyclohexane. Wynder et al. (22) ont montré que la fumée de cigarettes extraites par l'hexane à chaud donne un rendement en condensat significativement moins élevé que dans le cas d'un tabac à cigarettes non extrait. Cependant, ils ont trouvé que le processus d'extraction n'entraîne pas de diminution significative de la teneur en benzo-a-pyrène de la fumée, et il a été conclu que l'extraction sélective du tabac brut par solvants ne représente pas un moyen pratique pour diminuer significativement la teneur en hydrocarbures polycycliques supérieurs dans la fumée de tabac ainsi traitée.

Neukomm et Bonnet (43) ont mis au point un procédé pour l'extraction du tabac tendant à modifier sa combustion et à diminuer la quantité d'hydrocarbures aromatiques polynucléaires formés au cours de la pyro-génération. Le procédé consiste en un traitement du tabac à cigarettes par des hydrocarbures halogénés suivi par l'imprégnation à raison de 0.1 % de son poids d'une solution de diéthylmalonate d'aluminium dans  $CCl_4$ , ou de composés organo-métalliques similaires. Une diminution de 40 à 60 % des teneurs en hydrocarbures polycycliques dans la fumée du tabac a été revendiquée comme résultant de ce traitement. Cuzin et al. (44) et Waltz et Häusermann (45) ont répété ce travail et n'ont pas été en mesure de confirmer ces revendications. Il n'a été observé aucune différence significative d'activité bio-

teet (*sebaceous gland*) or by chemical analysis. In a further criticism, Uhlmann (46) analyzed statistically certain biological data on the Neukomm process (47) and showed that differences between test and control animals were insignificant.

**MISCELLANEOUS.** At least two other approaches to alter the composition of smoke have been employed : changes in cigarette paper porosity and changes in the overall tobacco characteristics as a result of alterations in cultural practices.

Schur and Rickards (32) have studied the effect of paper porosity in some detail and shown that significant reductions in total particulate matter of mainstream smoke can be effected by such means. Although the effect of changes in cultural practices of tobacco on smoke yields is an area of work not within the scope of the present report, Waltz and Häusermann (3) have presented some data which illustrate the general magnitude of change that can be effected by this approach.

**ADDENDUM :** After preparation of the manuscript, a report by Wynder and Hoffmann appeared [J. Amer. Med. Assoc. 192 : 96 (1965)] which discussed several pertinent points on this subject. Included in their report are findings on the effect of homogenized leaf and stems in cigarettes on the tumorigenicity of the smoke; the relative tumorigenic effects of cigarette tobacco types; the ciliostatic activity of certain filter and nonfilter cigarettes; and the use of copper nitrate and nickel acetate as cigarette additives to reduce the tumorigenic activity of the smoke.

logique ou de teneur en benzo-a-pyrène dans la fumée, pour des cigarettes contenant du tabac extrait, utilisant soit le test biologique à court terme (glande sébacée) soit l'analyse chimique. Continuant la critique, Uhlmann (46) a procédé à l'analyse statistique de certaines données biologiques portant sur le procédé Neukomm (47) et a montré que les différences entre animaux traités et témoins n'étaient pas significatives.

**DIVERS.** Deux autres lignes de recherches au moins ont été suivies en vue de modifier la composition de la fumée : modifications de la porosité du papier, et modifications des caractéristiques générales du tabac en tant que résultat de modifications dans les pratiques culturelles.

Schur et Rickards (32) ont étudié d'assez près l'influence de la porosité du papier et ont mis en évidence que des diminutions significatives de la matière particulaire totale de la fumée du courant principal peuvent être obtenues par ces voies. Bien que l'effet des variations introduites dans les pratiques culturelles constitue un champ de recherche qui n'appartient pas au domaine de la présente communication, Waltz et Häusermann (3) ont présenté quelques données qui illustrent l'ordre de grandeur des modifications qui peuvent être réalisées par cette voie.

**ADDENDUM:** Après la préparation de ce manuscrit, a été publiée une Communication de Wynder et Hoffmann [J. Amer. Med. Assoc. 192 96 (1965)] qui discute certains points appartenant à notre sujet. Leur Communication couvre les faits d'observation relatifs : à l'effet du tabac homogénéisé et des côtes introduites dans les cigarettes sur le potentiel tumorigène de la fumée; aux valeurs comparées du potentiel tumorigène pour divers types de tabac à cigarettes; à l'activité ciliostatique de diverses cigarettes avec ou sans filtre; à l'utilisation du nitrate de cuivre et de l'acétate de nickel comme additifs à la cigarette en vue de diminuer le potentiel tumorigène de la cigarette.

## LITERATURE

- (1) « Smoking and Health », Report of the Advisory Committee to the Surgeon General of the Public Health Service, U.S. Public Health Service Publication No. 1103, U.S. Government Printing Office, Washington, D.C., 1964.
- (2) « Smoking and Health », Summary and Report of the Royal College of Physicians of London on Smoking in Relation to Cancer of the Lung and Other Diseases, Pitman Publishing Co., New York, 1962.
- (3) Waltz, P., Häusermann, M., Zeitschr. Präventivmed. 8 : 73 (1963).
- (4) Keith, C.H., Derrick, J.C., J. Colloid Sci. 15 : 340 (1960); Tobacco Science 5 : 84 (1961).
- (5) Holmes, J.C., Hardcastle, J.E., Mitchell, R.I., Tobacco Science 3 : 148 (1959).
- (6) Osborne, J.S., Adamek, S., Hobbs, M.E., Anal. Chem. 28 : 211 (1956).
- (7) Philippe, R.J., Hobbs, M.E., Ibid 28 : 2002 (1956).

- (8) Stedman, R.L., CORESTA Bull. d'Inform. No. 4, 11 (1963).
- (9) Elmenhorst, H., Reckzeh, G., Beitr. Tabakforsch. **2** : 180 (1964).
- (10) Lindsey, A.J., in *Tobacco and Health*, edited by G. James and T. Rosenthal, Charles C. Thomas, Publisher, Springfield, Illinois, 1962, p. 21.
- (11) Van Duuren, B.L., *Ibid*, p. 33.
- (12) Falk, H.L., Kotin, P., Thompson, S., Arch. Environment. Health **9** : 169 (1964).
- (13) Radford, E.P., Jr., Hunt, V.R., *Science* **143** : 247 (1964).
- (14) Radford, E.P., Jr., Hunt, V.R., Little, J.B., *Science* **146** : 87 (1964).
- (15) Skrable, K.W., Haughey, F.J., Alexander, E.L., *Ibid* 86 (1964).
- (16) Neukomm, S., Bonnet, J., deTrey, M., Soc. Vaud. des Sciences Natur. Bull. **67** : 433 (1961).
- (17) Gilbert, J.A., Lindsey, A.J., Brit. J. Cancer **11** : 398 (1957).
- (18) Hurd, C.D., et al., J. Amer. Chem. Soc. **84** : 4509 (1962); **84** : 4515 (1962); **84** : 4519 (1962); **84** : 4524 (1962).
- (19) Badger, G.M., U.S. Natl. Cancer Inst. Monograph, No. 9 : 1 (1962).
- (20) Gil-Av, E., Shabtai, J., *Nature* **197** : 1065 (1963).
- (21) Ingram, D.J., Acta Med. Scandinav. **170** (Suppl. 369) : 43 (1961).
- (22) Wynder, E.L., Wright, G.F., Lam, J., *Cancer* **12** : 1073 (1959).
- (23) Lam, J., Acta Path. Microbiol. Scandinav. **39** : 207 (1956).
- (24) Wynder, E.L., Wright, G., Lam, J., *Cancer* **11** : 1140 (1958).
- (25) Wynder, E.L., Acta Med. Scandinav. **170** (Suppl. 369) : 63 (1961).
- (26) Roe, F.J.C., Acta Unio Internat. Contra Canc. **19** : 730 (1963); *Nature* **194** : 1089 (1962).
- (27) Alvord, E.T., Cardon, S.Z., Brit. J. Cancer **10** : 498 (1956).
- (28) Hitchcock, R., Jr., Cardon, S.Z., Alvord, E.T., U.S. Patent 2,859,753 (1958).
- (29) Latarjet, R., Cusin, J.L., Hubert-Habart, M., Muel, B., Royer, R., Bull. du Cancer **43** : 180 (1956).
- (30) Bentley, H.R., Burgan, J.G., Analyst **85** : 727 (1960).
- (31) deSouza, J.E., Scherbak, M., Analyst **89** : 735 (1964).
- (32) Schur, M.O., Rickards, J.C., Tobacco Science **4** : 69 (1960).
- (33) Ayres, C.I., Evelyn, S.R., Abst. 18th Tob. Chem. Res. Conf., 1964, p. 37.
- (34) Haag, H.B., Larson, P.S., Finnegan, J.K., Arch. Otolaryngol. **69** : 261 (1959).
- (35) Kensler, C.J., Battista, S.P., New England J. Med. **269** : 1161 (1963).
- (36) Dalhamn, T., Rylander, R., *Nature* **201** : 401 (1964).
- (37) Thayer, P.S., Kensler, C.J., *Science* **146** : 642 (1964).
- (38) Williamson, J.T., Allman, D.R., CORESTA Bull. d'Inform. No. 1, 7 (1964).
- (39) Hoffmann, D., Wynder, E.L., J. Natl. Cancer Inst. **30** : 67 (1963).
- (40) Spears, A., Tobacco Science **7** : 76 (1963).
- (41) Waltz, P., Häusermann, M., Beitr. Tabakforsch. **2** : 67 (1963).
- (42) Campbell, J.M., Lindsey, A.J., Brit. J. Cancer **10** : 649 (1956).
- (43) Neukomm, S., Bonnet, J., U.S. Patent 3,039,475 (1962).
- (44) Cuzin, J.L., Testa, S., Anguera, G., Zeitschr. Präventivmed. **8** : 125 (1963).
- (45) Waltz, P., Häusermann, M., Zeitschr. Präventivmed. **8** : 1 11 (1963).
- (46) Uhlmann, W., *Ibid*, p. 140.
- (47) Nicod, J.L., Zeitschr. Präventivmed. **6** : 444 (1961) (from Zeitschr. Präventivmed. **8** : 140 (1963)).
- (48) Kensler, C.J., « The Pharmacology of Tobacco Smoke. Effects of Chronic Exposure in Tobacco and Health, edited by G. James and T. Rosenthal, Charles C. Thomas, Publisher, Springfield, Illinois, 1962, p. 5.
- (49) Keith, C.H., Tesh, P.G., Tobacco Science **9** : 61 (1965).
- (50) Cuzin, J.L., Hubert-Habart, M., Muel, B., Royer, R., Latarjet, R., Bull. Soc. Chim. France, 982 (1960).
- (51) Cuzin, J., Testa, A., Testa, P., CORESTA, Compt. Rend. Journées d'Etude Vienne, 15 (1964).

TABLE 1

*Cigarette additives claimed to reduce the coal temperature of cigarettes*  
 Additifs pour cigarettes brevetés comme réducteurs de la température d'ignition

<i>U.S. patent number</i> N° de brevet U.S.	<i>Additive</i> Additif	<i>Claim</i> Effet revendiqué
2,785,681	<i>Aluminum foil</i> Feuille d'aluminium	<i>Lowers combustion temperature.</i> Abaisse la température de combustion.
2,827,903	<i>Aluminum foil</i> Feuille d'aluminium	<i>Cools smoke in advance of filtration.</i> Abaisse la température de la fumée avant filtration.
2,830,598	<i>Device containing KCl or KNO<sub>3</sub></i> Système contenant KCl ou KNO <sub>3</sub>	<i>Absorbs heat upon going into solution.</i> Absorbe de la chaleur en passant en solution.
2,970,072	<i>Silicone</i> »	<i>Provides lower burn rate.</i> Entraîne une diminution de la vitesse de combustion.
2,972,557	<i>Alkali metal bicarbonate or ruthenate.</i> Bicarbonates alcalins ou ruthénates.	<i>Lowers burn temperature.</i> Abaisse la température de combustion.
2,976,190	<i>Aluminum foil.</i> Feuille d'aluminium.	<i>Lowers combustion temperature.</i> Abaisse la température de combustion.
2,992,647	<i>NaH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub></i> »	<i>Lowers combustion temperature; reduces tar.</i> Diminue la température de combustion et le goudron.
3,034,932	<i>Alumina trihydrate.</i> Trihydrate d'aluminium.	<i>Lowers combustion temperature.</i> Abaisse la température de combustion.
3,065,755	<i>Nickel foil.</i> Feuille de nickel.	<i>Lowers temperature.</i> Diminue la température.
3,106,210	<i>Aluminiferous materials.</i> Matériaux aluminifères.	<i>Lowers temperature.</i> Diminue la température.
3,126,011	<i>Metallic salts of silicates, phosphates, borates; boric oxide.</i> Sels métalliques de silicates, phosphates, borates, anhydride borique.	<i>Lowers temperature.</i> Diminue la température.

TABLE 2

*Miscellaneous cigarette additives including special filter materials*  
 Additifs divers de la cigarette, y compris matériaux spéciaux pour filtres.

<i>U.S. patent number</i>	<i>Additive</i>	<i>Claim</i>
N° de brevet U.S.	Additif	Effet revendiqué
2,108,860	<i>Calcified bentonite.</i> Bentonite calcifiée.	<i>Resists water and shows select adsorptive properties.</i> Hydrofugeant manifestant des propriétés d'adsorption sélective.
2,460,284	<i>Chlorophyll</i> Chlorophylle	<i>Acts as a sensitizer for photooxidation.</i> Agit comme sensibilisateur de photo-oxydation.
2,460,285	<i>Chlorophyll</i> Chlorophylle	<i>Promotes oxidation of aldehydes.</i> Induit l'oxydation des aldéhydes.
2,707,959	<i>Polyvinylpyrrolidone.</i> »               »	<i>Reduces tar.</i> Diminue le goudron.
2,716,411	<i>Chlorophyll</i> Chlorophylle	<i>Promotes oxidation of aldehydes.</i> Induit l'oxydation des aldéhydes.
2,739,913	<i>Porphines</i> »	<i>Removes aldehydes.</i> Elimine les aldéhydes.
2,754,829	<i>Ion exchange resin.</i> Résines échangeuses d'ions.	<i>Binds nicotine.</i> Fixe la nicotine.
2,755,206	<i>Capsule content : tannic acid, tartaric acid, ferrous sulphate, chloride, etc.</i> Contenu de la capsule : acide tannique, acide tartrique, sulfate ferreux, chlorure, etc.	<i>Neutralizes harmful ingredients of smoke.</i> Neutralise les composants indésirables.
2,759,859	<i>Cuprene</i> »	<i>Reduces tar content.</i> Diminue la teneur en goudrons.
2,760,495	<i>Ethylene oxide and propylene oxide.</i> Oxydes d'éthylène et de propane.	<i>Converts nicotine or its salts into substance not giving nicotine on combustion.</i> Convertit la nicotine ou ses sels en une substance qui ne libère pas de nicotine à la combustion.
2,761,798	<i>Asbestos on nylon, cellulose-acetate; and combinations.</i> Amiante sur nylon, acétate de cellulose et combinaisons de ces variables.	<i>Improves filtration of tobacco smoke.</i> Améliore la filtration de la fumée de tabac.
2,768,913	<i>Dextran (from a group of same).</i> Dextrane (provenant de la famille des .....	<i>Absorbs various smoke constituents.</i> Absorbe divers constituants de la fumée.

<i>U.S. patent number</i>	<i>Additive</i>	<i>Claim</i>
<i>N° de brevet U.S.</i>	<i>Additif</i>	<i>Effet revendiqué</i>
2,774,354	<i>Chlorophyll coated asbestos.</i> Amiante imprégnée de chlorophylle.	<i>Removes tars, nicotine; chlorophyll contributes to efficiency of asbestos.</i> Elimine les goudrons et la nicotine; la chlorophylle contribue à l'efficacité de l'amiante.
2,786,471	<i>Vermiculite.</i> »	<i>Removes tars, nicotine, etc.</i> Elimine les goudrons, la nicotine etc.
2,792,006	<i>Carbon specially prepared on cellulose.</i> Carbone spécialement préparé sur cellulose.	<i>Absorbs carcinogens.</i> Absorbe les cancérogènes.
2,792,841	<i>Acetic acid, « ferrous ferrite ».</i> Acide acétique, « ferrite ferreuse ».	<i>Detoxifies by forming precipitates with deleterious products which are filtered.</i> Détoxique la fumée par formation de précipités avec les produits nocifs, qui sont retenus par filtration.
2,795,227	<i>Zirconium and its compounds.</i> Zirconium et ses composés.	<i>Chemically binds nitrogenous substances.</i> Engage les composés azotés en combinaisons chimiques fixes.
2,801,638	<i>Charcoal.</i> Charbon.	<i>Removes gaseous components.</i> Élimine les composants gazeux.
2,815,760	<i>Ion exchange resins : quaternary ammonium bases of polystyrene, phenol-formaldehyde.</i> Résines échangeuses d'ions : base Am IV de polystyrène et résines phénol-aldéhydes.	<i>Removes acids, bases, carbonyl compounds.</i> Elimine acides et bases, élimine les composés carbonyliques.
2,815,761	<i>Polyacrylhydrazine.</i> Polyacryl hydrazine.	<i>Removes aldehydes.</i> Élimine les aldéhydes.
2,818,073	<i>Cotton treatment.</i> Traitement du coton.	<i>Alters cellulose, increases the movement of particles in fibers.</i> Modifie la cellulose, augmente la mobilité des particules dans les fibres.
2,819,720	<i>Charcoal.</i> Charbon.	<i>Removes gaseous compounds ; cigarette construction gives cooler smoke.</i> Élimine les composés gazeux; la structure de la cigarette fournit une fumée plus fraîche.
2,832,351	<i>Chlorophyll.</i> Chlorophylle.	<i>Oxidizes aldehydes, ketones.</i> Oxyde les aldéhydes, les cétones.
2,834,354	<i>Polyfurfural on silicagel.</i> Polyfurfural absorbé sur silicagel.	<i>Removes polynuclear hydrocarbons.</i> Elimine les hydrocarbons polynucléaires.
2,839,065	<i>Zeolite (hydrated metal silicates).</i> Zéolites (silicates métalliques hydratés).	<i>Removes polar and unsaturated compounds.</i> Élimine les composés polaires et non-saturés.

<i>U.S. patent number</i>	<i>Additive</i>	<i>Claim</i>
<i>N° de brevet U.S.</i>	<i>Additif</i>	<i>Effet revendiqué</i>
2,872,928	<i>Desoxycholic acid.</i> Acide désoxycholique.	<i>Removes hydrocarbons.</i> Elimine les hydrocarbures.
2,881,769	<i>Starch.</i> Amidon.	<i>Reduces tars and nicotine.</i> Diminue goudrons et nicotine.
2,881,770	<i>Carbon.</i> Carbone.	<i>Removes nicotine.</i> Elimine la nicotine.
2,881,771	<i>Hydroxyethylcellulose.</i>	<i>Reduces tars and nicotine.</i> Diminue goudrons et nicotine.
2,881,772	<i>Tetraethylenepentamine salt of cellulose acid phosphate.</i> Sel de la tétraéthylène pentamine et de phosphate acide de cellulose.	<i>Removes aldehydes.</i> Elimine les aldéhydes.
2,883,990	<i>Collagen.</i> Collagène.	<i>Removes noxious substances.</i> Elimine les substances nuisibles.
2,890,973	<i>Nicotinic acid and adenosine triphosphoric acid.</i> Acide nicotinique et adénosine triphosphate.	<i>Reduces tars and lowers cutaneous temperature.</i> Diminue les goudrons et abaisse la température cutanée.
2,902,998	<i>Palladium chloride.</i> Chlorure de palladium.	<i>Neutralizes noxious gaseous components.</i> Neutralise les composants gazeux nuisibles.
2,904,050	<i>Wax.</i> Cire.	<i>Reduces tars and nicotine.</i> Diminue goudrons et nicotine.
2,908,280	<i>Pectic acid and salts.</i> Acide pectique et ses sels.	<i>Reduces tars and nicotine.</i> Diminue goudrons et nicotine.
2,909,182	<i>Ion exchange XE-58.</i> Résine échangeuse XE-58.	<i>Absorbs aliphatic acids and tars.</i> Absorbe acides gras et les goudrons.
2,915,069	<i>Charcoal.</i> Charbon.	<i>Reduces hydrocyanic acid.</i> Diminue l'acide cyanhydrique.
2,917,054	<i>Wheat flour.</i> Farine de blé.	<i>Reduces tars and nicotine.</i> Diminue goudrons et nicotine.
2,930,719	<i>Niacin.</i> Niacine.	<i>Reduces the vasoconstriction or action of smoke on cardiovascular system.</i> Diminue l'incidence vasoconstrictive ou l'action de la fumée sur le système cardiovasculaire.
2,933,420	<i>Attapulgite.</i> »	<i>Reduces tars and nicotine.</i> Diminue goudrons et nicotine.
2,938,818	<i>Hydrated lime-activated clay.</i> Argile hydratée activée par la chaux.	<i>Reduces tars.</i> Diminue les goudrons.
2,940,456	<i>Calcium diphosphate.</i> Disphosphate de calcium.	<i>Removes tars.</i> Elimine les goudrons.

<i>U.S. patent number</i>	<i>Additive</i>	<i>Claim</i>
<i>N° de brevet U.S.</i>	<i>Additif</i>	<i>Effet revendiqué</i>
2,941,906	<i>Desulfated sulfate of aluminum.</i> Sulfate d'aluminium neutralisé.	<i>Reduces tars.</i> Diminue les goudrons.
2,941,907	<i>N-Vinyloxazolidinone.</i> »	<i>Reduces tars.</i> Diminue les goudrons.
2,955,060	<i>Vermiculite.</i> »	<i>Reduces tars.</i> Diminue les goudrons.
2,967,118	<i>Kaolin clay.</i> Argile kaolinique.	<i>Removes tars.</i> Elimine les goudrons.
2,968,306	<i>Sodium salt of glycine.</i> Glycinat de sodium.	<i>Removes tars.</i> Elimine les goudrons.
2,985,549	<i>Gaseous alkyl halides.</i> Halogénures d'alkyles gazeux.	<i>Combines with nicotine.</i> Se combinent avec la nicotine.
2,992,648	<i>Petrolatum.</i> Vaseline de pétrole.	<i>Reduces tars.</i> Diminue les goudrons.
2,996,065	<i>Vermiculite.</i> »	<i>Reduces tars.</i> Diminue les goudrons.
3,003,504	<i>Cross-linked DVB polystyrene which contains amino groups.</i> Greffes DVB-Polystyrène porteuses de groupes amines.	<i>Removes aldehydes.</i> Elimine les aldéhydes.
3,005,732	<i>Hydrated lime and kaolin clay.</i> Chaux hydratée et argile kaolinique.	<i>Reduces tars.</i> Diminue les goudrons.
3,006,346	<i>Flexible urethane foam and activated charcoal.</i> Mousse plastique d'uréthane et charbon activé.	<i>Reduces tars.</i> Diminue les goudrons.
3,008,473	<i>Starch.</i> Amidon.	<i>Reduces tars and nicotine.</i> Diminue les goudrons et la nicotine.
3,008,474	<i>Glycerol.</i> »	<i>Removes tars.</i> Elimine les goudrons.
3,011,921	<i>Alumina bound to leaf.</i> Alumine liée à la feuille.	<i>Eliminates deleterious matter.</i> Elimine les matières délétères.
3,019,794	<i>Gelatin and water soluble salt.</i> Gelatine et son sel hydrosoluble.	<i>Reduces tars.</i> Diminue les goudrons.
3,025,861	<i>Triacetin.</i> Triacétine	<i>Reduces tars.</i> Diminue les goudrons.
3,033,212	<i>Polyolefin.</i> Polyolefine.	<i>Reduces tars and nicotine.</i> Diminue goudrons et nicotine.

<i>U.S. patent number</i>	<i>Additive</i>	<i>Claim</i>
<i>N° de brevet U.S.</i>	<i>Additif</i>	<i>Effet revendiqué</i>
3,049,449	<i>Attapulgite clay dispersed in H<sub>2</sub>O.</i> Argile attapulgique dispersée dans l'eau.	<i>Reduces tars.</i> Diminue les goudrons.
3,050,421	<i>Aluminum.</i> Aluminium.	<i>Reduces tars by 38 %.</i> Diminue les goudrons de 38 %.
3,076,728	<i>Alumina.</i> Alumine.	<i>Reduces tars.</i> Diminue les goudrons.
3,079,926	<i>Fowl lung.</i> Poumon de poulet.	<i>Removes deleterious matter.</i> Elimine les matières délétères.
3,010,723	<i>Activated charcoal.</i> Charbon activé.	<i>Activation increases surface area.</i> L'activation augmente l'aire superficielle.
3,112,755	<i>Citric acid.</i> Acide citrique.	<i>Neutralizes inhibitory action of tobacco smoke.</i> Antagoniste de l'action inhibitrice de la fumée de tabac.

TABLE 3

*Materials other than paper and acetylated cellulose employed as cigarette filters.*

Matériaux autres que papier et cellulose acétylée employés comme filtres sur cigarettes

<i>U.S. patent number</i> N° de brevet U.S.	<i>Composition</i>
2,707,960	<i>Viscose</i> »
2,770,241	<i>Polyurethane</i> »
2,804,874	<i>Leavened flour</i> Farine levée.
2,812,767	<i>Rayon viscose.</i> Rayonne.
2,813,051	<i>Rayon viscose.</i> Rayonne.
2,818,868	<i>Ethylene terephthalate</i> Terephthalate d'éthylène
2,916,038	<i>Vinyl resins.</i> Résines vinyliques.
2,966,157	<i>Polyolefins.</i> Polvoléfines.
3,028,864	<i>Corrugated aluminum</i> Aluminium plissé.
3,030,964	<i>Collagen fibers mixed with conventional fibers.</i> Mélange de fibres de collagène et de fibres conventionnelles.
3,032,445	<i>Polyethylene oxide.</i> Polyoxyde d'éthylène.